

ИСТОЧНИКИ И ПРИЕМНИКИ ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

УДК 535-32/52

Температурные зависимости показателей преломления
нелинейного кристалла LiB_3O_5 в ТГц-диапазоне

Д.М. Ежов¹✉, Д.М. Лубенко², А.А. Мамрашев³, Ю.М. Андреев^{1, 4*}

¹Национальный исследовательский Томский государственный университет
634050, г. Томск, пр. Ленина, 36

²Институт сильноточной электроники СО РАН
634055, г. Томск, пр. Академический, 2/3

³Институт автоматики и электрометрии СО РАН
630090, г. Новосибирск, пр. Академика Коптюга, 1

⁴Институт мониторинга климатических и экологических систем СО РАН
634055, г. Томск, пр. Академический, 10/3

Поступила в редакцию 27.07.2022 г.;
после доработки 17.08.2022 г.;
принята к печати 22.08.2022 г.

С использованием образцов нелинейного кристалла LBO размером $30 \times 30 \times 10 \text{ мм}^3$ методом терагерцовой спектроскопии с временным разрешением получены спектрально-температурные зависимости главных компонент показателя преломления в диапазоне 0,05–0,5 ТГц при нагреве от 20 до 200 °С. Обнаружено пересечение показателей преломления n_x и n_y при температуре ~84 °С. Полученные данные могут быть использованы для управления типами и условиями фазового синхронизма для реализуемых преобразований частоты в длинноволновую часть ТГц-диапазона, перспективную для создания систем мониторинга газового состава атмосферы из-за слабой чувствительности к влиянию аэрозолей.

Ключевые слова: нелинейный кристалл, триборат лития, LiB_3O_5 , ТГц-диапазон, температурная зависимость, показатель преломления, генерация разностной частоты, двулучепреломление; nonlinear crystal, lithium triborate, LiB_3O_5 , THz range, temperature dependence, refractive index, difference frequency generation, birefringence.

Для создания систем мониторинга состава и состояния атмосферы на протяженных трассах актуальной задачей является разработка мощных источников терагерцового (ТГц) излучения [1]. Особенно перспективна для решения этих задач область 0,05–0,5 ТГц, в которой мало аэрозольное рассеяние и присутствует большое число микроокоп прозрачности атмосферы [2]. Существующие электронные источники требуемого диапазона обладают малой выходной мощностью, а оптические преобразователи на основе полупроводниковых нелинейных кристаллов (НК) имеют невысокие эксплуатационные и выходные характеристики. Один из привлекательных путей освоения длинноволновой части ТГц-диапазона – разработка высокоэффективных параметрических преобразователей излучения на основе высоконадежных оксидных нелинейных кристаллов, например трибората лития LiB_3O_5 (LBO). Такие кристаллы, в отличие от полупроводниковых, имеют

более высокий порог оптического пробоя и широко применяются для преобразования частоты излучения лазеров видимого и ближнего ИК-диапазонов в УФ-диапазон.

LBO является отрицательным двухосным кристаллом точечной группы симметрии $mm2$. Он негигроскопичен, имеет температуру плавления 1107 К и твердость 5,5–6,0 по шкале Мооса, что позволяет полировать его с плоскостью до $\lambda/10$ [3]. Его кристаллооптические оси x , y , z параллельны кристаллографическим осям a , c , b соответственно. В видимом диапазоне для главных показателей преломления соблюдается соотношение $n_x < n_y < n_z$, которое меняется при переходе в ТГц-диапазон на $n_z < n_x < n_y$ [4]. В диапазоне 0,5–1,2 мкм кристалл характеризуется чрезвычайно низким коэффициентом поглощения $\leq 10^{-5} \text{ см}^{-1}$ [5]. Состоящая из малоразмерных атомов кристаллическая решетка LBO обладает оптимальными теплофизическими параметрами для роста монокристаллов больших размеров. Использование модифицированного метода Киропулоса позволяет выращивать монокристаллы весом более 2 кг с чрезвычайно низким количеством примесей [6]. В силу перечисленных свойств

* Дмитрий Михайлович Ежов (ezhov_dm@mail.ru);
Дмитрий Михайлович Лубенко (lubenkodm@gmail.com);
Александр Анатольевич Мамрашев (mamrashev@iae.nsk.su);
Юрий Михайлович Андреев (yuandreev@yandex.ru).

лучевая стойкость НК LBO экстремально высока. По литературным данным [7], для импульсов накачки длительностью 1,1 нс на $\lambda = 1,064$ мкм она составляет ~ 36 ГВт/см². Высокая лучевая стойкость делает НК LBO привлекательным для преобразования частоты излучения высокоинтенсивных лазеров несмотря на низкие коэффициенты нелинейной восприимчивости (максимальный нелинейный коэффициент $d_{32} = 0,98$ пм/В [3]). Возможности применения НК LBO в преобразователях частоты в ТГц-диапазон рассмотрены в [8, 9].

Знание температурных зависимостей показателей преломления критически важно для определения возможностей температурной перестройки условий фазового синхронизма. В видимом диапазоне с ростом температуры от 20 до 200 °С компоненты показателя преломления кристалла LBO уменьшаются на величину порядка $5 \cdot 10^{-3}$ [10]. Данных по поведению коэффициентов поглощения и показателей преломления при нагреве кристалла для ТГц-диапазона не имеется.

В настоящей работе изучены температурные зависимости компонент показателя преломления НК LBO при нагреве от 20 до 200 °С в области 0,05–0,5 ТГц.

Исследованы два образца НК LBO размерами $30 \times 30 \times 10$ мм³, изготовленные в ИГМ СО РАН. Образцы большой апертуры необходимы для корректного измерения оптических свойств в длинноволновой части ТГц-диапазона вплоть до 0,05 ТГц. Использование двух образцов, один из которых вырезан в плоскости xy (LBO-XY), а второй — в плоскости yz (LBO-YZ), позволило определить все три компоненты показателя преломления. Для корректного расчета показателей преломления учтено температурное расширение кристаллов [11]. Так, рассчитано, что при нагреве до 300 °С образец LBO-XY утолщается на 310 мкм, а образец LBO-YZ — на 103 мкм.

Оптические терагерцовые свойства регистрировались с помощью широкополосного импульсного спектрометра, собранного по модифицированной схеме [12], в которой в качестве лазера накачки использовался твердотельный фемтосекундный титан-сапфировый лазер Chameleon Vision 2 (Coherent, США), в режиме пропускания. Детектирование ТГц-излучения осуществлялось во временном диапазоне электрооптическим методом с помощью кристалла ZnTe толщиной 2 мм и автобалансного детектора ABL-100 (Zomega, США). Значения коэффициентов преломления затем извлекались из время-разрешенных спектров с использованием стандартной модели однородной среды. Температура исследуемого образца устанавливалась и поддерживалась с точностью до 0,1 °С с помощью термостата с широко-импульсным контроллером REX-C100.

На рис. 1 приведены измеренные при комнатной температуре показатели преломления образцов большей толщины и апертуры по сравнению с использованными ранее образцами [13] толщиной ~ 2 мм и апертурой ~ 4 мм. Образцы больших размеров по-

зволили уточнить оптические свойства LBO в спектральной области $< 0,2$ ТГц.

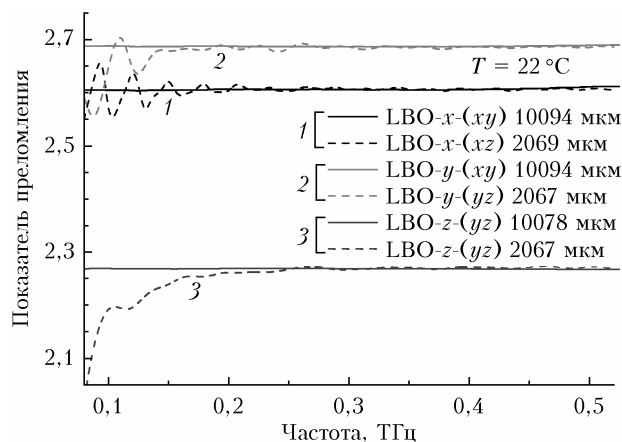


Рис. 1. Спектральные зависимости компонент показателя преломления НК LBO при комнатной температуре

Средние значения компонент показателя преломления кристалла в зависимости от температуры аппроксимированы методом наименьших квадратов полиномом 3-й степени и показаны на рис. 2.

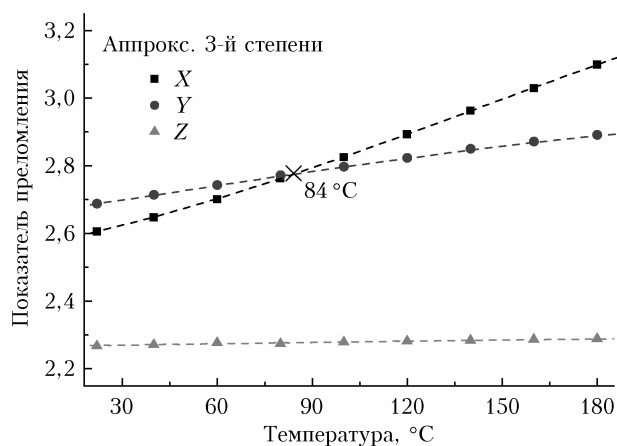


Рис. 2. Средние значения компонент показатель преломления при изменении температуры

В ТГц-диапазоне компонента показателя преломления в направлении оси x растет быстрее компоненты в направлении оси y . При температуре ~ 84 °С компоненты n_x и n_y сравниваются. С использованием полученных полиномов аппроксимаций найдем температурные производные показателей преломления в диапазоне температур 20–200 °С:

$$\frac{dn_x}{dT} = 0,00165 + T(2,45 \cdot 10^{-5} - 8,41 \cdot 10^{-8}T),$$

$$\frac{dn_y}{dT} = 0,00136 + T(2,31 \cdot 10^{-6} - 2,62 \cdot 10^{-8}T),$$

$$\frac{dn_z}{dT} = 0,00014 + T(2,88 \cdot 10^{-7} - 2,85 \cdot 10^{-9}T).$$

Таким образом, получены температурные зависимости компонент показателя преломления нелинейного кристалла LBO, которые могут быть использованы для расчета условий фазового синхронизма при температурной перестройке в задаче генерации разностной частоты в длинноволновой части ТГц-диапазона 0,05–0,5 ТГц. Излучение этого диапазона перспективно для измерения газового состава и температуры атмосферы, а также решения других задач оптики атмосферы из-за минимального влияния аэрозолей и преципитатов на результаты измерений. Впервые демонстрируется пересечение главных компонент показателя преломления n_x и n_y . В исследуемой ТГц-области значения главных компонент показателя преломления LBO при комнатной температуре удовлетворяют соотношению $n_z < n_x < n_y$, в окрестности 84 °С количество компонент вырождается ($n_x = n_y$), при дальнейшем нагреве соотношение изменяется на $n_z < n_y < n_x$. Это, в частности, приводит к тому, что при генерации разностной частоты из видимого в ТГц-диапазон спектра при нагреве необходимо рассматривать не только общепринятые $ss-f$, $sf-f$ и $fs-f$ типы взаимодействий, но и все другие разрешенные типы.

Финансирование. Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-32-90106.

Список литературы

1. Naftaly M., Vieweg N., Deninger A. Industrial applications of Terahertz sensing: State of play // *Sensors*. 2019. V. 19, N 19. 35 p.
2. Marcus M., Pattan B. Millimeter wave propagation: Spectrum management implications // *IEEE Microw. Mag.* 2005. V. 6, N 2. P. 54–62.
3. Nikogosyan D.N. Lithium triborate (LBO) // *Appl. Phys. A*. 1994. V. 58, N 3. P. 181–190.
4. Andreev Yu.M., Kokh A.E., Kokh K.A., Lanskii G.V., Litvinenko K., Mamrashev A.A., Molloy J.F., Mordin B., Naftaly M., Nikolaev N.A., Svetlichnyi V.A. Observation of a different birefringence order at optical and THz frequencies in LBO crystal // *Opt. Mater.* 2017. V. 66. P. 94–97.
5. Waasem N., Fieberg S., Hauser J., Gomes G., Haertle D., Kühnemann F., Buse K. Photoacoustic absorption spectrometer for highly transparent dielectrics with parts-per-million sensitivity // *Rev. Sci. Instrum.* 2013. V. 84, N 2. 8 p.
6. Tu H., Hu Z., Zhao Y., Yue Y., Hou J., Fan F. Growth of large aperture LBO crystal applied in high power OPCPA schemes // *J. Cryst. Growth*. 2020. V. 546. P. 125728.
7. Yoshida H., Fujita H., Nakatsuka M., Yoshimura M., Sasaki T., Kamamura T., Yoshida K. Dependences of laser-induced bulk damage threshold and crack patterns in several nonlinear crystals on irradiation direction // *Japan. J. Appl. Phys.* 2006. V. 45, N 2A. P. 766–769.
8. Andreev Y.M., Naftaly M., Molloy J.F., Kokh A.E., Lanskii G.V., Svetlichnyi V.A., Losev V.F., Kononova N.G., Kokh K.A. LBO: Optical properties and potential for THz application // *Laser Phys. Lett.* 2015. V. 12, N 11. P. 115402.
9. Kononova N.G., Kokh A.E., Kokh K.A., Lanskii G.V., Losev V.F., Svetlichnyi V.A., Andreev Y.M. Down-conversion of short-wavelength radiation in LBO crystal // *Russ. Phys. J.* 2016. V. 59, N 8. P. 1307–1315.
10. Tang Y., Cui Y., Dunn M.H. Thermal dependence of the principal refractive indices of lithium triborate // *J. Opt. Soc. Am. B*. 1995. V. 12, N 4. P. 638–643.
11. Grechin S.G., Zuev A.V., Kokh A.E., Moiseev N.V., Popov P.A., Sidorov A.A., Fokin A.S. Thermophysical parameters of the LBO crystal // *Quant. Electron.* 2010. V. 40, N 6. P. 509–512.
12. Mamrashev A.A., Nikolaev N.A., Kuznetsov S.A., Gelfand A.V. Broadband metal-grid polarizers on polymeric films for terahertz applications // *AIP Conf. Proc.* N 2300. 2020. P. 020083–020085.
13. Mamrashev A., Minakov F., Nikolaev N., Antsygin V. Terahertz time-domain polarimetry for principal optical axes of anisotropic crystals // *Photonics*. 2021. V. 8, N 6. P. 213.

D.M. Ezhov, D.M. Lubenko, A.A. Mamrashev, Yu.M. Andreev. Temperature dependences of the refractive indices of a nonlinear LiB₃O₅ crystal in the THz range.

Using nonlinear LBO crystals of $30 \times 30 \times 10 \text{ mm}^3$ in size, the spectral-temperature dependences of refractive indices in the long-wavelength part of the THz range 0.05–0.5 THz are obtained by means of terahertz time-domain spectroscopy under heating from 20 to 200 °C. Intersection of spectral dependences of the refractive index components n_x and n_y at ~84 °C is found. The results can be used for selection of types and phase-matching conditions for frequency conversion into long-wavelength part of the THz range, which is prospective for monitoring the gas composition of the atmosphere due to weak influence of the aerosol attenuation.